

Photon-Phonon-Zweiquantenprozesse zwischen Kern-Zeemanniveaus

Inaugural-Dissertation
zur Erlangung der Doktorwürde
des Fachbereichs Physik
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von
Martin Reusche

aus Großkugel

1972

Photon-Phonon-Zweiquantenprozesse zwischen Kern-Zeemanniveaus

Inaugural-Dissertation
zur Erlangung der Doktorwürde
des Fachbereichs Physik
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von
Martin Reusche
aus Großkugel



1. Referent: Prof. Dr. S. Wilking

2. Referent: Prof. Dr. K. Möbius

Tag der mündlichen Prüfung: 13.3.1972

Inhalt

1	Einleitung	Seite	1
2	Theoretischer Teil		2
3	Experimenteller Teil		7
4	Literatur		13
5	Anhang		14



Digitized by the Internet Archive
in 2026

1 Einleitung und Zusammenfassung

Die gleichzeitige Wechselwirkung eines Teilchensystems mit einem Photonfeld und einem Phononfeld kann Photon-Phonon-Zweiquantenprozesse erzeugen. Shiren¹⁾ gelang der Nachweis solcher Prozesse an einem Elektronenspinsystem. In der vorliegenden Arbeit wird über Photon-Phonon-Zweiquantenprozesse zwischen den Zeemanniveaus eines Kernspinsystems berichtet.

Zur theoretischen Beschreibung des Experiments dient das folgende Modell: Die Elementarzelle eines kubischen Einkristalls enthält einen Kern mit dem Kernspin $I > 1/2$. Dieser befindet sich in einem statischen Magnetfeld, einem monochromatisch besetzten Photonfeld und einem monochromatisch besetzten Phononfeld. Die Kernspin-Phonon-Wechselwirkung kommt durch die Kopplung des Kernquadrupolmomentes mit dem Gradienten des elektrischen Kristallfeldes zustande.

Der experimentelle Nachweis der Photon-Phonon-Prozesse geschieht durch Messung der damit verbundenen resonanten Änderung der Photonfeldamplitude. Zur Erzeugung des Schallfeldes ist die Probe als mechanischer Resonator ausgebildet. Im Hinblick auf die Trennung der Resonanzlinien ist eine Substanz mit geringer Kernresonanzlinienbreite vorteilhaft. Deshalb wurde ¹²⁷J in Kaliumjodid gewählt.

Die Photon-Phonon-Zweiquantenprozesse ermöglichen die Messung der Kernspin-Phonon-Wechselwirkung ohne direkten Nachweis der Phononabsorption. Umgekehrt gestatten diese Prozesse die Untersuchung der Kernspin-Photon-Wechselwirkung, indem man die Phononabsorption nachweist. Die Photon-Phonon-Zweiquantenresonanz kann daher als spektroskopische Methode verwendet werden, wenn die Untersuchung dieser Wechselwirkungen durch Einquantenprozesse versagt, z.B. im ersten Fall wegen zu hoher akustischer Grunddämpfung, im zweiten Fall aufgrund des Skineffektes.

2 Theoretischer Teil

Der Hamiltonoperator des betrachteten Systems (Kern, statisches Magnetfeld, Photonfeld, Phononfeld) sei

$$(1) \quad H = H_0 + V_1 + V_2$$

Darin bedeutet

$$(2) \quad H_0 = (\hbar\omega_\lambda n_\lambda + \hbar\omega_\sigma n_\sigma) - \gamma \hbar \vec{I} \cdot \vec{B}_0 + \sum_{u=-2}^2 (-1)^u Q^{(u)} G_0^{(u)}$$

mit $\omega_\lambda, n_\lambda$: Frequenz, Besetzungszahl des Photonmodes λ

ω_σ, n_σ : Frequenz, Besetzungszahl des Phononmodes σ

$\gamma \hbar \vec{I}$: Kerndipolmoment

$\vec{B}_0$: statisches Magnetfeld

$Q^{(u)}$: u -te Komponente des Kernquadrupoltensors

$G_0^{(u)}$: statischer Anteil der u -ten Komponente des Kristallfeldgradienten am Kernort.

Die Wechselwirkungsenergie V_1 des Kerns mit dem Photonfeld wird in Dipolnherung gegeben durch (2)

$$(3) \quad V_1 = -i\gamma \hbar \sqrt{\frac{2\pi \hbar \omega_\lambda}{v}} (a_\lambda - a_\lambda^+) (\vec{I} \cdot \vec{b}_\lambda)$$

mit v : Periodizittsvolumen

a_λ, a_λ^+ : Vernichtungs-, Erzeugungsoperator des Photonmodes λ

$\vec{b}_\lambda$: magnetischer Polarisationsvektor des Photonmodes λ ($\vec{b}_\lambda = \frac{c}{\omega_\lambda} \vec{k}_\lambda \times \vec{e}_\lambda$).

Die Wechselwirkungsenergie V_2 des Kerns mit dem Phononfeld wird beschrieben durch (3) x)

$$(4) \quad V_2 = \sum_{u=-2}^2 (-1)^u Q^{(u)} \sum_i \vec{G}_i^{(u)} \cdot \vec{e}_\sigma \sqrt{\frac{\hbar}{20\pi v \omega_\sigma}} [a_\sigma (e^{+i\vec{k}_\sigma \cdot \vec{g}_{i-1}}) + a_\sigma^+ (e^{-i\vec{k}_\sigma \cdot \vec{g}_{i-1}})]$$

mit $\vec{G}_i^{(u)}$: Koeffizient des linearen Gliedes der Taylorentwicklung der u -ten Komponente des Kristallfeldgradienten nach relativen Auslenkungen $\vec{r}_{i0} = \vec{r}_i - \vec{r}_0$

$\vec{r}_i$: Auslenkung des i -ten Kerns aus der Ruhelage

$\vec{e}_\sigma$: Polarisationsvektor des Phononmodes

a_σ, a_σ^+ : Vernichtungs-, Erzeugungsoperator des Phononmodes σ

$\vec{k}_\sigma$: Wellenzahlvektor des Phononmodes σ

$\vec{g}_i$: Gittervektor ($\vec{g}_0 = 0$)

ρ : Massendichte des Kristalls.

x) Siehe dort (7), (10), (14). Die Beziehung (4) folgt nach einigen Umformungen.

Die Experimente wurden mit einem Kristall kubischer Symmetrie durchgeführt, also ist $G_0^{(u)} = 0$.

Dann hat ein Eigenvektor $|A\rangle$ von H_0 die Form

$$(5) \quad |A\rangle = |n_\lambda n_\sigma m\rangle = |n_1 n_2 m\rangle$$

mit m : Orientierungsquantenzahl des Kerns.

Mit den Abkürzungen $\vec{b}_\lambda = \vec{b}$, $\vec{k}_\sigma = \vec{k}$, $\vec{e}_\sigma = \vec{e}$ erhält man für die Matrixelemente der Operatoren V_1 und V_2 in der gewählten Basis

$$(6) \quad \langle n'_1 n'_2 m' | V_1 | n_1 n_2 m \rangle = -i\gamma\hbar \sqrt{\frac{2\pi\hbar\omega_1}{v}} \langle m' | \vec{I} \cdot \vec{b} | m \rangle \cdot (\sqrt{n_1} \delta_{n'_1, n_1-1} - \sqrt{n_1+1} \delta_{n'_1, n_1+1}) \delta_{n'_2, n_2}$$

$$(7) \quad \langle n'_1 n'_2 m' | V_2 | n_1 n_2 m \rangle = \sqrt{\frac{\pi}{2\rho v\omega_2}} \sum_{\mu, l} (-1)^\mu \langle m' | Q^{(\mu)} | m \rangle \delta_{n'_1, n_1} \cdot (G_1^{(\mu)} \cdot \vec{e}) [(e^{+ik \cdot \vec{g}_1} - 1) \sqrt{n_2} \delta_{n'_2, n_2-1} - (e^{-ik \cdot \vec{g}_1} - 1) \sqrt{n_2+1} \delta_{n'_2, n_2+1}]$$

Für einen Zweiquantenprozeß ist der erste nichtverschwindende Beitrag zur Übergangswahrscheinlichkeit zwischen den entarteten Eigenzuständen $|A\rangle$ und $|B\rangle$ proportional zum Betragsquadrat des Compoundelementes zweiter Ordnung ^{x)}

$$(8) \quad K_{BA}^{(2)} = \sum_R \frac{\langle B | V_1 + V_2 | R \rangle \langle R | V_1 + V_2 | A \rangle}{E_A - E_R}$$

mit $E_A = n_1 \hbar \omega_1 + n_2 \hbar \omega_2 + \epsilon$, analog E_B, E_R

$\epsilon = -m\gamma\hbar B_0 = -m\hbar\omega_0$: Kern-Zeeman-Energie im Zustand $|A\rangle$.

Wenn die Nenner der Summanden in Gleichung (8), die einen Photon-Phonon-Zweiquantenprozeß beschreiben, klein sind gegen die Nenner solcher Glieder, die zu Photon-Photon- oder Phonon-Phonon-Prozessen gehören, so reduziert sich (8) auf

$$(9) \quad K_{BA}^{(2)} = \sum_R \left(\frac{\langle B | V_2 | R \rangle \langle R | V_1 | A \rangle}{E_A - E_R} + \frac{\langle B | V_1 | R \rangle \langle R | V_2 | A \rangle}{E_A - E_R} \right) \cdot$$

Zur Beschreibung der beobachteten Prozesse ist (9) eine gute Näherung.

Bei den vorliegenden Untersuchungen war ω_1 und ω_2 gegeben, wobei stets $|2\omega_1 - \omega_2|$ größer als die Linienbreite der Ein-Photonresonanz war. Die möglichen Photon-Phononübergänge unter dieser Bedingung werden in Abb. 1 veranschaulicht.

^{x)} s. Anhang

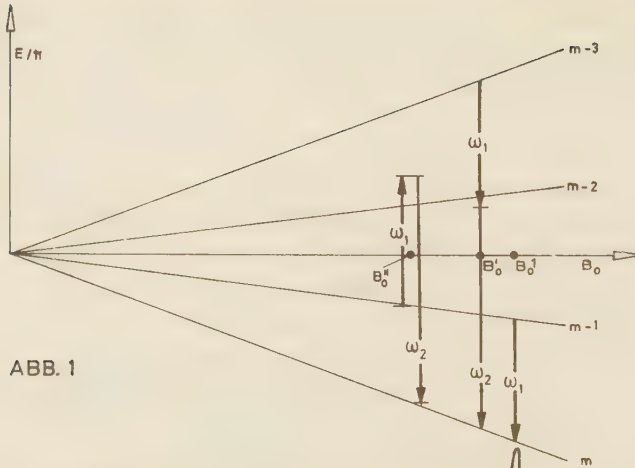


ABB. 1

Linienpektrum bei Beobachtung der
Besetzungszahl des Photonmodes

Die Feldwerte $B'_0 = \omega'_0/\gamma$ und $B''_0 = \omega''_0/\gamma$, bei denen einer der beiden Prozesse jeweils resonant ist, folgen aus den Beziehungen

$$(10) \quad \omega_1 + \omega_2 = 3\omega'_0, \quad |B\rangle = |n_1 \mp 1, n_2 \mp 1, m \mp 3\rangle$$

$$(11) \quad \omega_2 - \omega_1 = \omega''_0, \quad |B\rangle = |n_1 \pm 1, n_2 \mp 1, m \mp 1\rangle$$

Für die beiden Differenzen

$$(12) \quad \Delta B' = B_0^1 - B'_0 \text{ und } \Delta B'' = B_0^1 - B''_0$$

mit $B_0^1 = \omega_1/\gamma$ ergibt sich aus (10) und (11)

$$(13) \quad \Delta B' = (2\omega_1 - \omega_2)/3\gamma \text{ bzw. } \Delta B'' = (2\omega_1 - \omega_2)/\gamma = 3\Delta B'.$$

Zum Compoundelement der Prozesse, die die Gleichungen (10) oder (11) erfüllen, liefern nur solche Glieder des Operators V_2 einen Beitrag, die den Operator $Q^{(+2)}$ oder $Q^{(-2)}$ enthalten.

Bei dem Prozeß, der die Gleichung (10) erfüllt, wird sowohl ein Phonon als auch ein Photon absorbiert (emittiert) (Abb. 1). Für das Compoundelement ergibt sich für Absorption (oberes Vorzeichen) bzw. Emission (unteres Vorzeichen).

$$(14) \quad K_{BA}^{(2)} = \Gamma_{+}^{(-)} \cdot \left(\frac{C_1}{(-) \cdot 2\hbar\omega'_0(-) \cdot \hbar\omega_2} + \frac{C_2}{(-) \cdot \hbar\omega'_0(-) \cdot \hbar\omega_1} \right)$$

$$C_1 = \langle m_{(-)} 3 | I_{(-)} | m_{(-)} 2 \rangle \langle m_{(-)} 2 | Q \left(\begin{pmatrix} + \\ + \end{pmatrix}^2 \right) | m \rangle$$

$$C_2 = \langle m_{(+)} 3 | Q \left(\begin{pmatrix} - \\ + \end{pmatrix}^2 \right) | m_{(+)} 1 \rangle \langle m_{(+)} 1 | I_{(+)} | m \rangle$$

$$\Gamma_{+}^{(-)} = -iv\hbar \sqrt{\frac{\pi m^2 \omega_1 n_1 n_2}{2 \omega_1^2 \omega_2}} \cdot b_{+}^{(-)} \cdot \sum_i \left(G_i^{(2)} \cdot \vec{e} \right) \left(e^{(-)} \right)^i \left(\vec{k} \cdot \vec{g}_i \right)_{-1}$$

$$Q \left(\begin{pmatrix} + \\ + \end{pmatrix}^2 \right) = \frac{eQ}{2I(2I-1)} \cdot \frac{\sqrt{6}}{2} \cdot I_{+}^2 \left(\begin{pmatrix} + \\ + \end{pmatrix} \right)$$

Q: Quadrupolmoment des Kerns in der üblichen Definition.

Es ist $C_1 = C_2$. Setzt man $\Delta' = \omega_1 - \omega'_0$, so folgt aus (14) mit (10)

$$(15) \quad K_{BA}^{(2)} = \frac{\Gamma_{+}^{(-)} \cdot C_1}{\hbar} \left(\frac{1}{(-) \cdot 2\omega'_0(-) \cdot \omega_2} + \frac{1}{(-) \cdot \omega'_0(-) \cdot \omega_1} \right) - \frac{\Gamma_{+}^{(-)} \cdot C_1}{\hbar} \left(\frac{1}{(-) \cdot \Delta'} + \frac{1}{(-) \cdot \Delta'} \right) = 0.$$

Dieses Ergebnis steht im Widerspruch zum experimentellen Befund: es wird ein Übergang, der die Resonanzbedingung (10) erfüllt, beobachtet.

Bisher wurde die Kernspinrelaxation noch nicht berücksichtigt. Neben der Wechselwirkung des in Gleichung (1) betrachteten Kerns mit dem Photonmode λ und dem Phononmode σ besteht für diesen Kern die die Relaxation verursachende Spin-Spin- und Spin-Gitter-Kopplung. Der Hamiltonoperator (1) erfaßt daher nicht alle Wechselwirkungen, denen der Kern unterworfen ist, sodaß auch Übergänge des Kerns möglich sind, die nicht durch die Kopplungen V_1 und V_2 zustande kommen. Die Relaxationsprozesse sollen nachträglich dadurch erfaßt werden, daß als Ausgangsgleichung für die störungstheoretische Approximation statt der Integralgleichung ^{x)}

$$S(t) = \mathbf{1} + \frac{1}{i\hbar} \int_0^t \tilde{V}(t_1) S(t_1) dt_1, \quad V = V_1 + V_2$$

für den Operator S als phänomenologischer Ansatz die Integralgleichung

$$(16) \quad S(t) = \mathbf{1} e^{-(t/\tau)} + \frac{1}{i\hbar} \int_0^t \tilde{V}(t_1) S(t_1) dt_1$$

benutzt wird. Dieser Ansatz führt bereits in 0.ter Näherung, d.h. ohne Berücksichtigung der Wechselwirkungen V_1 und V_2 zum exponentiellen Zerfall des

^{x)} s. Anhang (A1)

Amplitudenbetrags des Zustandsvektors $|t\rangle = \exp\left(\frac{H}{i\hbar}t\right)S(t)|o\rangle$. Der Zusammenhang der hier eingeführten Zeitkonstanten τ , die in alle Compoundelemente ^{x)} eingeht, mit der Linienbreite wird weiter unten diskutiert.

Statt (8) erhält man nun

$$(8') \quad K_{BA}^{(2)} = \sum_R \frac{\langle B | V_1 + V_2 | R \rangle \langle R | V_1 + V_2 | A \rangle}{E_A - E_R - i\hbar/\tau}$$

und statt (15)

$$(15') \quad K_{BA}^{(2)} = \frac{\Gamma_{(+)}^{(+)} \cdot C_1}{\hbar} \cdot \frac{2/\tau}{\Delta''^2 + 1/\tau^2} \cdot i$$

Bei dem Prozeß, der die Gleichung (11) erfüllt, wird ein Photon emittiert (absorbiert) und ein Phonon absorbiert (emittiert) (Abb.1). Aus (9) ergibt sich zunächst

$$(18) \quad K_{BA}^{(2)} = \Gamma_{(+)}^{(+)} \cdot \left(\frac{C_1}{(\bar{+}) 2\hbar\omega_0^{(+)} \hbar\omega_2} + \frac{C_2}{(\bar{-}) \hbar\omega_0^{(+)} \hbar\omega_1} \right)$$

$$C_1 = \langle m_{(+)} 1 | I_{(+)} | m_{(+)} 2 \rangle \langle m_{(+)} 2 | Q_{(+)}^{(+)} | m \rangle$$

$$C_2 = \langle m_{(+)} 1 | Q_{(+)}^{(+)} | m_{(+)} 1 \rangle \langle m_{(+)} 1 | I_{(+)} | m \rangle$$

$$\Gamma_{(+)}^{(+)} = i\gamma\hbar \sqrt{\frac{\pi\hbar^2 \omega_1 n_1 n_2}{\rho v \omega_2}} \cdot b_{(+)} \cdot \sum_i (\vec{G}_i^{(2)} \cdot \vec{e}) (e^{(-)} i(\vec{k} \cdot \vec{g}_1)^{-1})$$

oder analog zu (15')

$$(18') \quad K_{BA}^{(2)} = \frac{C_1 \Gamma_{(+)}^{(+)}}{\hbar} \cdot \frac{1}{\Delta''^2 + 1/\tau^2} \left((\bar{+}) \Delta'' \cdot (1-c) - i/\tau \cdot (1+c) \right)$$

$$\text{mit } \Delta'' = \omega_1 - \omega_0'' \text{ und } c = C_2/C_1.$$

Für diesen Prozeß ergibt sich also auch für $\tau \rightarrow \infty$ eine nichtverschwindende Übergangswahrscheinlichkeit.

^{x)} s. Anhang (A6)

3 Experimenteller Teil

Der prinzipielle Aufbau der experimentellen Anordnung ergibt sich aus der Struktur des Hamiltonoperators (1): Eine Probe befindet sich in einem statischen Magnetfeld und einem magnetischen Wechselfeld. Gleichzeitig wird ein akustischer Mode angeregt. Die Photon-Phonon-Zweiquantenübergänge werden nachgewiesen durch Beobachtung der damit verbundenen resonanten Änderung der Photonfeldbesetzungszahl. Die Untersuchungen wurden an ¹²⁷J, Kernspin $I = 5/2$, in Kaliumjodid durchgeführt. Wie aus dem Blockschaltbild der Abb. 2 hervorgeht, läßt sich die Apparatur aufgliedern in einen Teil zur Erzeugung des Schallfeldes und einen Teil, der gleichzeitig der Erzeugung des magnetischen Wechselfeldes und dem Nachweis der Zweiquantenprozesse dient.

Da die akustischen Eigenschaften der Probe an anderer Stelle ⁽⁴⁾ beschrieben werden, soll hier nur kurz darauf eingegangen werden. Zur Erzeugung des longitudinalen Phononfeldes wurden zwei gegenüberliegende Endflächen des würfelförmigen Einkristalls planparallel geschliffen und auf eine dieser Flächen ein X-cut Quarztransducer gekittet. Diese Anordnung stellt einen mechanischen Resonator dar, dessen Einfluß auf die elektrischen Eigenschaften des Transducers durch ein Ersatzschaltbild beschrieben werden kann ⁽⁵⁾. Die Anpassung des quarzgesteuerten Hochfrequenzgenerators mit Verstärker an den mechanischen Resonator vermittelt ein auf der Primär- und Sekundärseite zum Schwingkreis ergänzter Transformator. Die Fundamentalfrequenz des Transducers beträgt 8 MHz, sein Durchmesser ist mit 15 mm etwa gleich der Seitenlänge der Probe. Seine spezielle metallische Bedampfung (Abb. 2) schirmt das Transducer-Hochfrequenzfeld nach außen ab. Da die Längsabmessungen und damit die Resonanzfrequenzen des akustischen Resonators temperaturabhängig sind, befindet sich der Probenkopf (Abb. 2) in einer Ummantelung, die an den Kreislauf eines Thermostaten angeschlossen ist. Zur Erzeugung des magnetischen Wechselfeldes wird ein zweiter quarzgesteuerter Hochfrequenzgenerator verwendet, als Detektor eine Doppel-T-Brücke ⁽⁶⁾. An den Brückenausgang schließt sich eine bei NMR-Experimenten übliche Nachweisapparatur an.

Der magnetische Polarisationsvektor $\vec{b}$ und der Wellenzahlvektor des longitudinalen Phononfeldes waren beide parallel zur (100)-Richtung des Kristalles und senkrecht zur Richtung des statischen Magnetfeldes. Bei dieser Konfiguration sind die Matrixelemente des Compoundelementes ⁽⁹⁾ maximal für die Prozesse mit den Resonanzbedingungen (10) und (11).

Die Winkelabhängigkeit der Matrixelemente ⁽⁶⁾, ⁽⁷⁾ des Operators V_1 und der Glieder des Operators V_2 mit dem Summationsindex $u = \pm 2$ wird gegeben durch

$$\langle \alpha' | V_1 | \alpha \rangle = A_{\alpha'} \sin \vartheta$$

$$\langle \alpha' | V_2 | \alpha \rangle = B_{\alpha'} \sin^2 \vartheta$$

mit $|\alpha\rangle = |n_1 n_2 m\rangle$

$A_{\alpha'\alpha}, B_{\alpha'\alpha}$ winkelunabhängiger Anteil

ϑ Winkel zwischen $\vec{B}_0$ und der Symmetrieachse (100).

Bei den vorliegenden Messungen blieb die Phononfrequenz konstant; sie war gleich derjenigen Eigenfrequenz des akustischen Resonators, die der Fundamentalfrequenz des Transducers am nächsten lag. Für jeden Resonanzdurchgang wurde die Photonenfrequenz ω_1 als Parameter fest eingestellt und zur Abtastung des Resonanzbereichs das Magnetfeld B_0 variiert. Es wurden Signale nachgewiesen, die der Resonanzbedingung (10) bzw. (11) genügen. Dabei erscheinen die Übergänge, die der Gleichung (10) genügen, in Absorption, die anderen in Emission, was als weitere Bestätigung für die Interpretation der beobachteten Linien als Photon-Phonon-Zweiquantenprozesse angesehen werden muß. Abb.3 zeigt ein Schreiberprotokoll als Beispiel.

Abb.4 zeigt für 23 Resonanzdurchgänge einen Vergleich der gemessenen Abstände Δ_{exp} der Zweiquantenresonanzen von der Einphotonresonanz mit den aus (10) bzw. (11) folgenden theoretischen Werten. Der Meßfehler von Δ_{exp} liegt unter 100 Hz. Durch die Zeitkonstante des Lock-in wird eine Verschiebung der Resonanzlinie verursacht, die bei der Auswertung korrigiert wurde. Die untere Grenze von Δ ist durch die Nachbarschaft der Einphotonresonanz bedingt. Für die Änderung ΔU_1 der Spannungsamplitude U_1 am Detektorschwingkreis durch die beschriebenen Zweiquantenprozesse gilt unter der Voraussetzung, daß der Hochfrequenzgenerator eine Stromquelle ist

$$(19) \quad U_1 \cdot \Delta U_1 = F_1 \cdot \sum |K_{BA}^{(2)}|^2 .$$

Die Summation erstreckt sich über alle Übergänge, die die Resonanzbedingung (10) bzw. (11) erfüllen, im Zeeman-Termschema mit $I = 5/2$.

Außerdem gilt

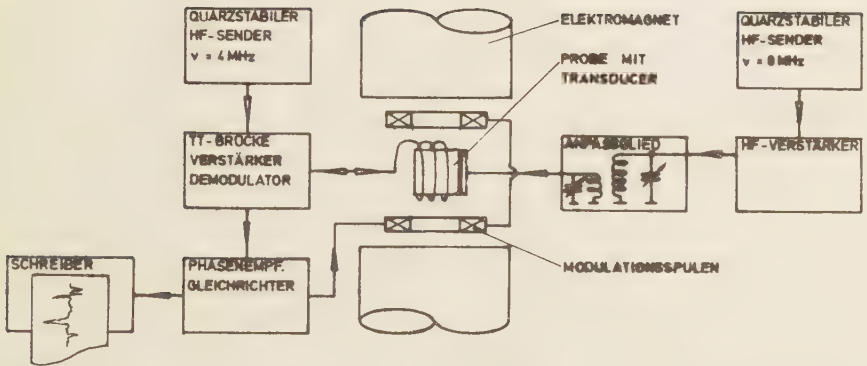
$$\sum |K_{BA}^{(2)}|^2 = F_2 \cdot B_1^2 \cdot \epsilon^2 = F_3 \cdot U_1^2 \cdot U_2^2 .$$

Aus beiden Gleichungen ergibt sich für die Nachweisgröße ΔU_1

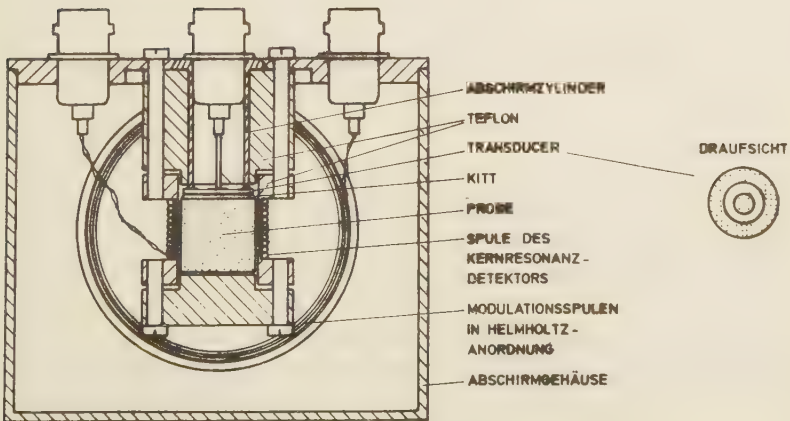
$$(20) \quad \Delta U_1 = F \cdot U_1 \cdot U_2^2$$

mit $\vec{B}_1$ magnetische Amplitude des Photonfeldes
 ϵ Strainamplitude des Phononfeldes
 U_2 Transducerspannung.

Die Faktoren F_1, F_2, F_3, F sind im Rahmen des theoretischen Modells unabhängig von U_1 und U_2 .



BLOCKSCHALTBIOD DER VERSUCHSANORDNUNG



MESSPROBENKOPF

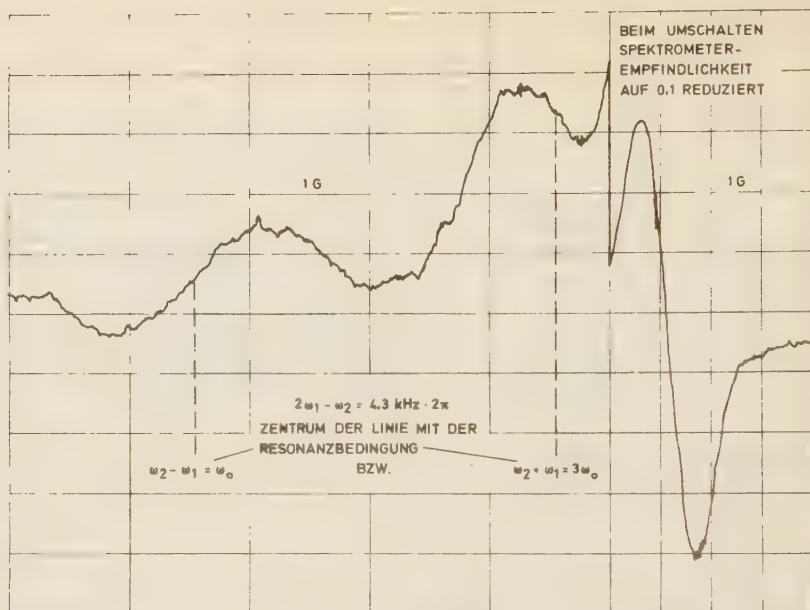


ABB. 3

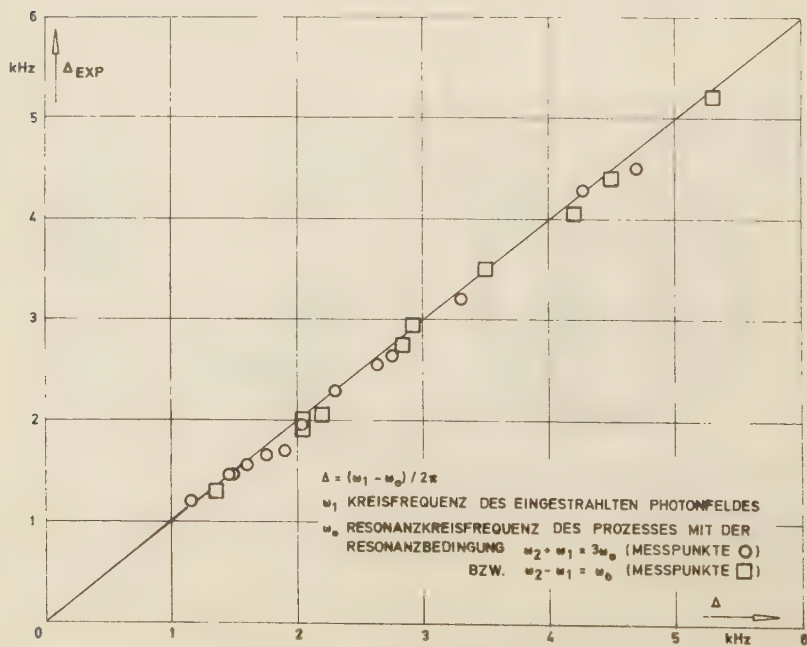


ABB. 4

Die Auswertung der Meßergebnisse zeigt, daß mit wachsenden Amplituden U_1 und U_2 die Größe F stärker abnimmt, als es aufgrund von Sättigung zu erwarten ist; jedoch reicht die Nachweisempfindlichkeit der vorliegenden Meßanordnung noch nicht aus, um den Bereich für die Feldamplituden angeben zu können, in dem (20) gilt.

Es soll noch eine Abschätzung der mit dem Ansatz (16) eingeführten Zeitkonstanten τ anhand der Messungen durchgeführt werden. Dazu wird im Rahmen der obigen Theorie das Verhältnis der Übergangswahrscheinlichkeiten $P^{(v)}$ und $P^{(e)}$ mit der Resonanzbedingung (10) bzw. (11) gebildet. Die Übergangswahrscheinlichkeit dieser Prozesse ist proportional zu $|K_{BA}^{(2)}|^2$, wobei die Summation wie in (19) durchgeführt wird. Mit (15') und (18') folgt, wenn $\Delta' = \Delta'' = \Delta$ gewählt wird

$$(21) \quad \frac{P^{(v)}}{P^{(e)}} = \frac{5,8}{5,0 + (\Delta \cdot \tau)^2}, \quad \Delta' = \Delta'' = \Delta.$$

Eine Konsistenzprobe erhält man, indem man einen Zusammenhang der Zeitkonstanten τ mit der Halbwertsbreite der Resonanzlinie herstellt. Für einen qualitativen Vergleich genügt die Feststellung, daß die Übergangswahrscheinlichkeit $P_{BA} = |S_{BA}|^2$ nach (A6) im wesentlichen Lorentzform hat, wobei τ die Linienbreite festlegt^{x)}. Für Resonanzlinien mit Lorentzform gilt

$$(22) \quad \tau = \frac{2}{\Delta\omega \cdot \sqrt{3}}$$

$\Delta\omega$ Abstand der Extrema der differenzierten Lorentzfunktion auf der ω -Achse. Die Bestimmung des Verhältnisses von $P^{(v)}$ und $P^{(e)}$ aus den Signalamplituden der Zweiquantenprozesse für $\Delta/2\pi = 3 \text{ kHz}$ ergibt $P^{(v)}/P^{(e)} = (0,40 \pm 0,15)$. Daraus folgt mit (21)

$$\tau = (1,6 \pm 0,4) \cdot 10^{-4} \text{ s.}$$

Aus der Linienbreite der ungesättigten Einphotonresonanz der verwendeten Meßprobe erhält man $\Delta\omega = (5,5 \pm 0,5) \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$.

Daraus folgt mit (22)

$$\tau = (2,1 \pm 0,2) \cdot 10^{-4} \text{ s.}$$

Der Vergleich dieser beiden Werte ist jedoch insofern sehr problematisch als infolge unzureichender Empfindlichkeit nur im Sättigungsbereich gemessen werden konnte und nicht feststellbar war, ob das Sättigungsverhalten der Signale mit der Resonanzbedingung (10) bzw. (11) unterschiedlich ist.

Es ist geplant, mit einer empfindlicheren experimentellen Anordnung eine quantitative Untersuchung der Amplitudenabhängigkeit dieser Prozesse durchzuführen und insbesondere näheren Aufschluß über die Berechtigung des Ansatzes (16) zu erhalten.

^{x)} In der phänomenologischen Theorie der Kernresonanz von Bloch tritt im Fall vernachlässigbarer Sättigung die transversale Kernspinrelaxationszeit T_2 als Linienbreitenparameter auf. Daraus folgt, daß die mit (16) eingeführte Zeitkonstante τ der Blochschen Zeitkonstanten T_2 entspricht; Sättigungseffekte werden mit dem Ansatz (16) nicht erfaßt.

Zum Schluß soll der Zusammenhang der Photon-Phonon-Zweiquantenprozesse mit der konventionellen Kernresonanz und der akustischen Kernresonanz erörtert werden.

Die Untersuchung von Substanzen mit der Einphotonresonanz (NMR) liefert Aussagen über die Kernspin-Photon-Wechselwirkung, während man durch die Einphonon-Kernresonanz (NAR) Aussagen über die Kernspin-Phonon-Wechselwirkung erhält. Wie sich beide Methoden beim Studium der Eigenschaften von Substanzen ergänzen, wird in der Literatur ausführlich diskutiert (4,7).

Das gemeinsame Auftreten der Matrixelemente (6) und (7) in dem Compoundelement (9) zeigt, daß in den Signalen der Photon-Phonon-Zweiquantenübergänge Aussagen sowohl über die Kernspin-Photon- als auch über die Kernspin-Phonon-Wechselwirkung enthalten sind. Die Zweiquantenresonanz bietet sich daher als spektroskopische Methode in den Fällen an, in denen eine direkte Untersuchung der Wechselwirkungen V_1 und V_2 durch NMR bzw. NAR versagt.

So kann im Falle hoher akustischer Grunddämpfung in der Probensubstanz die Kernspin-Phonon-Wechselwirkung untersucht werden, indem man wie in der vorliegenden Arbeit den Nachweis über die Photonen führt und für die Matrixelemente des Operators V_1 in Gleichung (9) die Messungen der Einphotonresonanz heranzieht.

Umgekehrt kann bei der Untersuchung der Kernspin-Photon-Wechselwirkung in Metallen der Nachteil des Skineffektes weitgehend dadurch umgangen werden, indem man gleichzeitig ein niederfrequentes magnetisches Wechselfeld und ein hochfrequentes Schallfeld einstrahlt und die Zweiquantenprozesse durch Phononabsorption nachweist. Analog zum ersten Fall können dann in der Beziehung (9) die Matrixelemente des Operators V_2 aus der Einphononresonanz bestimmt werden.

4 Literatur

- (1) N. S. Shiren Phys. Rev. Lett. 6, 168 (1961)
- (2) S. Wilking Z. Phys. 173, 490 (1963)
- (3) J. v. Kranendonk Physica XX, 781 (1954)
- (4) D. I. Bolef Physical Acoustics IVa, Academic Press,
New York and London (1966)
- (5) T. F. Hueter Sonics, Wiley, New York (1965)
- (6) A. Loesche Kerninduktion, Deutscher Verlag der Wis-
senschaften, Berlin (1957)
- (7) W. Burkersrode Fortschritte der Physik 18, 479 (1970)

Die vorliegende Arbeit wurde im III. Physikalischen Institut der Freien Universität Berlin durchgeführt. Ich danke Herrn Prof. Dr. S. Wilking für sein förderndes Interesse und für wertvolle Diskussionen.

5 Anhang

Zur Berechnung der Übergangswahrscheinlichkeit P_{BA} zwischen den Eigenzuständen $|A\rangle$ und $|B\rangle$ des Hamiltonoperators H_0 macht man für den Zustandsvektor des Gesamtsystems den Ansatz $|t\rangle = \exp(-\frac{H_0 t}{i\hbar}) S(t) |0\rangle$ mit der Anfangsbedingung $S(0) = 1$ und

setzt ihn in die Gleichung in $\partial_t |t\rangle = (H_0 + V) |t\rangle$ ein. Daraus folgt für S die Integralgleichung

$$(A1) \quad S(t) = 1 + \frac{1}{i\hbar} \int_0^t \tilde{V}(t_1) S(t_1) dt_1$$

$$\text{mit} \quad \tilde{V}(t) = \exp(-\frac{H_0 t}{i\hbar}) V \exp(\frac{H_0 t}{i\hbar}) .$$

Ersetzt man S im Integranden iterativ durch die ganze rechte Seite der Gleichung, so entsteht die Reihenentwicklung der Diracschen Störungstheorie

$$(A2) \quad S(t) = 1 + \sum_{\kappa=1}^{\infty} S^{(\kappa)}(t) = 1 + \sum_{\kappa=1}^{\infty} \left(\frac{1}{i\hbar}\right)^{\kappa} \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \dots \int_0^{t_{\kappa-1}} dt_{\kappa} \tilde{V}(t_1) \tilde{V}(t_2) \dots \tilde{V}(t_{\kappa}) .$$

Es gilt $P_{BA}(t) = |S_{BA}(t)|^2$. Ist $E_B \approx E_A$, aber kein weiterer Eigenwert des Gesamtsystems mit E_A vergleichbar, d.h. $|E_B - E_A| \ll |E_A - E_R|$ für alle R verschieden von A, B , so gilt (2)

$$(A3) \quad S_{BA}(t) = \delta_{BA} - \frac{\exp(i(E_B - E_A)t) - 1}{E_B - E_A} \sum_{\kappa=1}^{\infty} K_{BA}^{(\kappa)}$$

$$\text{mit} \quad K_{BA}^{(\kappa)} = \sum_{R_1} \dots \sum_{R_{\kappa-1}} \frac{V_{BR_1} V_{R_1 R_2} \dots V_{R_{\kappa-1} A}}{(E_A - E_{R_1})(E_A - E_{R_2}) \dots (E_A - E_{R_{\kappa-1}})}$$

mit der Abkürzung $V_{NM} = \langle N | V | M \rangle$.

Für $\kappa = 2$ und $V = V_1 + V_2$ folgt daraus Gleichung (8).

Geht man bei der Störungsrechnung statt von Gleichung (A1) von dem Ansatz

$$(A4) \quad S(t) = 1 \exp(-t/\tau) + \frac{1}{i\hbar} \int_0^t \tilde{V}(t_1) S(t_1) dt_1$$

aus, so ergibt das Iterationsverfahren

$$(A5) \quad S(t) = 1 \exp(-t/\tau) + \sum_{\kappa=1}^{\infty} \left(\frac{1}{i\hbar}\right)^{\kappa} \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \dots \int_0^{t_{\kappa-1}} dt_{\kappa} \tilde{V}(t_1) \tilde{V}(t_2) \dots \tilde{V}(t_{\kappa}) \exp(-t_{\kappa}/\tau) .$$

Daraus folgt statt (A3)

$$(A6) \quad S_{BA}(t) = \delta_{BA} \exp(-t/\tau) - \frac{\exp(i(E_B - E_A - i\hbar/\tau)t) - 1}{E_B - E_A + i\hbar/\tau} \sum_{\kappa=1}^{\infty} K_{BA}^{(\kappa)}$$

$$\text{mit} \quad K_{BA}^{(\kappa)} = \sum_{R_1} \dots \sum_{R_{\kappa-1}} \frac{V_{BR_1} V_{R_1 R_2} \dots V_{R_{\kappa-1} A}}{(E_A - E_{R_1} - i\hbar/\tau)(E_A - E_{R_2} - i\hbar/\tau) \dots (E_A - E_{R_{\kappa-1}} - i\hbar/\tau)} .$$

Für $\kappa = 2$ und $V = V_1 + V_2$ folgt daraus Gleichung (8').

L e b e n s l a u f

Am 10. September 1941 wurde ich als Sohn des Pfarrers Erich Reusche und seiner Ehefrau Emma, geb. Dennerlein, in Großkugel geboren. Nach der Grundschulzeit in den Jahren 1948 bis 1956 in Wittenberg besuchte ich die Philipp-Melanchthon-Ober-Oberschule in Wittenberg von 1956 bis 1960 und legte dort die Reifeprüfung ab. Im Jahre 1961 bestand ich die Anerkennungsprüfung zum Reifezeugnis der DDR am Diesterweg-Gymnasium in Berlin-Wedding.

Im Wintersemester 1961/62 begann ich an der Freien Universität Berlin des Physikstudium und legte im Sommersemester 1964 die Diplom-Vorprüfung ab. Meine Diplomarbeit fertigte ich am III. Physikalischen Institut der FUB bei Prof. Dr. S. Wilking an und bestand am 28.6.1967 die Diplomprüfung. Seitdem bin ich als Wissenschaftlicher Assistent an der FUB beschäftigt und als Doktorand im III. Physikalischen Institut tätig.

